

PÉCSI TUDOMÁNYEGYETEM

Fizika Doktori Iskola

Lézerfizika, nemlineáris optika és spektroszkópia program

Lítium niobát és Lítium tantalát többfotonos abszorpciós együtthatóinak meghatározása z-scan módszerrel

Ph.D. Értekezés tézisei

Imene Benabdelghani

Témavezető:

Dr. Polónyi Gyula

PTE TTK Fizikai Intézet



PÉCS, 2024

PÉCSI TUDOMÁNYEGYETEM

Fizika Doktori Iskola

Lézerfizika, nemlineáris optika és spektroszkópia program

Lítium niobát és Lítium tantalát többfotonos abszorpciós együtthatóinak meghatározása z-scan módszerrel

Ph.D. Értekezés tézise

Imene Benabdelghani

Témavezető:

Dr. Polónyi Gyula

PTE TTK Fizikai Intézet



PÉCS, 2024

1. Bevezetés

Az elmúlt két évtizedben a femtoszekundumos, közeli infravörös impulzusok optikai egyenirányítása (OR) lítium-niobátban (LN vagy LiNbO_3) vált a legelterjedtebb módszerévé a nagyenergiájú terahertzes (THz) impulzusok előállításának alacsony frekvenciákon (0,1 - 2 THz) lehetővé téve mind a nagyenergiájú széles sávú- [1-3] mind a keskeny sávú THz-es sugárzást. [4-6] Az OR sikerét számos kritikus tényezőnek tulajdoníthatjuk. Egy kulcsfontosságú elem az eltérő törésmutatók jelentős különbségének áthidalása a pumpáláshoz használt közeli infravörös lézersugárzás és a THz-es hullámok között. Ez teszi lehetővé a pumpáló energia hatékony átalakítását THz-es sugárzássá. Az egyik módszer a kvázi fázisillesztés, amelyet a kristályos anyag periodikus pólozásával érnek el [7], a másik a döntött impulzusfrontú pumpálási technika (TPFP) [8] amelyekkel hatékonyan növelték a konverziós hatásfokot. Azonban lényeges kihívás ezekben az esetekben a nemlineáris abszorpció hatása. Ezt sokféle anyagban vizsgálták [9], különös tekintettel a többfotonos abszorpcióra (MPA) [10,11] és a szabad töltéshordozók abszorpciójára (FCA) [11]. Ezek a tulajdonságok lényegesek LN nemlineáris optikai alkalmazása szempontjából. LN nemlineáris optikai tulajdonságai:

viszonylag nagy tiltott sávzélességgel rendelkezik (körülbelül 3.8 eV) [12,13], nagy a roncsolási küszöbe: 204 GW/cm² 1 ps-os impulzushosszak esetén, 10 kHz-es ismétlési frekvencián [14]. Lítium tantalát (LT or LiTaO₃), LN-hez hasonlóan egy szervesetlen kristály, LN izomorfja, ahol Ta⁵⁺ ion van Nb⁵⁺ ion helyett [15]. LN-hez képest még szélesebb tiltott sávzélességgel rendelkezik (4.9 eV) [16]. THz-keltés szempontjából szintén érdekes anyag köszönhetően a kiváló optikai és elektronikus tulajdonságainak [17], a nagy nemlineáris koefficiensének és roncsolási küszöbének. Több tanulmány is foglalkozik LN és LT MPA koefficiensének meghatározásával különböző technikákkal, azonban az egyik legmegbízhatóbb és legpontosabb technika a Sheik-Bahae et al. [18] által bevezetett Z-scan módszer ezeknél az anyagoknál. Ez a technika az anyagok transzmissziójának mérésén alapul az optikai tengelyen való pozíciójuk függvényében. Egy egyszerű transzmissziós mérés segítségével határozták meg LN kétfotonos abszorpcióját (2PA) [19]. LT esetén 2PA és harmadrendű nemlineáris törésmutató lett meghatározva adalékolatlan és kongruens kristályokban [20-22]. Ugyancsak Z-scan módszerrel határozták meg LN háromfotonos abszorpcióját (3PA) [23], illetve a szkennelt nemlineáris együtthatóját a kis polaron formálódás időtartományában [24]. Azonban LT 3PA értéke még soha nem lett kimérve. Egy

korábbi tanulmányban LN négyfotonos abszorpcióját (4PA) megbecsülték a THz-keltési határfokának telítődéséből [25]. Illetve nemrég egy egyszerű transzmissziós mérésből határozták meg 4PA együtthatóját sztoichiometrikus LN kristálynak [26]. Megjegyzendő, hogy a legjobb tudomásunk szerint még nem volt példa Z-scan módszeren alapuló 4PA meghatározására LN-ban. Emiatt e tanulmány lényeges fontossággal bír LN és LT nemlineáris optikai paramétereinek meghatározásában, hogy segítség ezen anyagok optimális körülmények között való felhasználását.

2. Célok és Módszerek

LN kristály nagy effektív nemlineáris együtthatóval rendelkezik, ami előnyös optikai egyenirányításon alapuló THz-keltés számára. A hasonló szimmetriaosztályba tartozó LT ferroelektromos kristály szintén érdekes lehet THz-keltés szempontjából. Azonban számos kihívás nehezíti a THz-es energia és térerősség további növelését, többek között az MPA és a belőle származó szabad töltéshordozók abszorpciója a THz-es tartományban. A disszertációban taglalt kísérleti munkák Szentágothai János Kutatóközpontban lévő, a Fizikai Intézethez tartozó Nagyintenzitású Terahertzes Laboratóriumban, valamint a budapesti Wigner Kutatóközpontban lévő, Szilárdtestfizikai és Optikai Kutatóintézethez tartozó Ultragyors Nagyintenzitású Fényanyag-kölcsönhatások Laboratóriumban kerültek elvégzésre. Ezeknek megfelelően a megfogalmazott általános célkitűzés az volt, hogy megvalósítható megoldásokat javasoljon és hajtson végre két különböző lézerforrás segítségével a vizsgált anyagok pontos tanulmányozásával a THz-keltéssel kapcsolatos kihívásokra.

Konkrétabban az alábbi célok kerültek kitűzésre: A fő cél lítium niobát és lítium tantalát kristályok többfotonos abszorpciók együtthatóinak meghatározása Z-scan módszerrel

két különböző lézerforrást felhasználva. Az első célom nyitott apertúrás Z-scan mérések elvégzése volt különböző magnézium adalékolású kongruens (cLN) és sztoichiometrikus (sLN) LN kristályokban extraordinárius polarizációval egy Titán-zafír lézerrendszer (Newport-Spectra Physics) segítségével, amely 40 fs-os impulzushosszú 800 nm-es hullámhosszú impulzusokat bocsát ki 1 kHz-es ismétlési frekvencián. A csúcs intenzitás a kristályokban 110 és 550 GW/cm² között volt változtatva. A második cél LT 3PA-jának meghatározása volt ugyanezzel a lézerforrással, különböző magnézium adalékolású kongruens (cLT) és sztoichiometrikus (sLT) kristályokban ordinárius és extraordinárius polarizáció esetén. A pumpáló intenzitás 120 és 480 GW/cm² között volt változtatva. A harmadik cél ugyanezen LN kristályok 4PA-jának meghatározása egy Yb lézerforrással (Pharos, Light Conversion), amely 190 fs-os impulzushosszú 1030 nm-es hullámhosszú impulzusokat bocsát ki 1 kHz-es ismétlési frekvencián. A csúcs intenzitás a kristályokban 180 GW/cm² volt. A negyedik cél a THz-keltéshez és más nemlineáris optikai felhasználáshoz optimális kristályparaméterek meghatározása volt nagy intenzitású tartományon. Összehasonlítottam LN és LT kristályok 3PA-it hasonló pumpálási körülmények között (800 nm, 40 fs, extraordinárius polarizáció, ~250 GW/cm² pumpáló intenzitás).

3. Tézispontok

- I. Nyitott-apertúrás Z-scan méréseket végeztem annak érdekében, hogy megvizsgáljam a lehetséges fotonabszorpciós együtthatókat 800 nm hullámhosszon, 40 fs-os impulzushosszon és 1 kHz ismétlési frekvenciával kongruens (cLN, cLT) és a sztoichiometrikus (sLN, sLT) lítium niobátban és lítium tantalátban különböző Mg-adalékolással. A méréseket kifejezetten az extraordinárius polarizációra vonatkozóan végeztem el a lítium niobát kristályok esetében, miközben mind az ordinárius, mind az extraordinárius polarizációkat figyelembe vettem a lítium tantalát kristályok esetében. A kristályokon belüli csúcsintenzitás körülbelül 110 és 550 GW/cm² között változott. Az eredmények azt mutatják, hogy a domináns többfotonos abszorpció ezen a pumpálási hullámhosszon a háromfotonos abszorpció (3PA) [S1, S2].
- II. Meghatároztam LN és LT háromfotonos abszorpciós együtthatóit (3PA). Az értékelés egy elméleti görbe illesztésével történt a mért pontokhoz. A 3PA együtthatók jellegzetes változásokat mutattak különböző Mg-adalékolásnál és különböző

intenzitásoknál. Mind a cLN, mind az sLN kristályok olyan Mg-adalékolásnál mutattak minimumot az abszorpciós együtthatókban, ami megfelel a fotorefrakciós hatás kiküszöbölésének. Mindkét összetételű LN kristálynál 290 GW/cm^2 intenzitásnál mértem maximum abszorpciós együtthatót. Mind a cLT, mind az sLT kristályok esetében a transzmissziós görbék lényegesen mélyebb értékeket mutatnak az ordinárius polarizációhoz képest az extraordinárius polarizációhoz viszonyítva. Ennek megfelelően a számított 3PA együtthatók nagyobb nagyságrendeket mutatnak az ordinárius polarizáció alatt, mint az extraordinárius polarizáció alatt. Az LT kristályok abszorpciója csökken az intenzitás növekedésével 120 GW/cm^2 -től 480 GW/cm^2 -ig, és csak csekély különbség van az abszorpcióban a különböző módon adalékolt sztöchiometrikus minták között alacsony pumpálási intenzitásoknál, ami eltűnik 240 GW/cm^2 felett. A kongruens LT alacsonyabb többfotonos abszorpcióval rendelkezik, ezért vonzóbb a nemlineáris alkalmazások számára, például a THz-keltés szempontjából [S1, S2].

III. 1030 nm pumpáló hullámhosszon vizsgáltam különböző adalékolású és összetételű LN kristályok

többszörös abszorpciós együtthatóit nyitott-apertúrás Z-scan mérésekkel, 190 fs-os impulzusok felhasználásával 1 kHz ismétlési frekvencián. A vizsgálatot kongruens és sztoichiometrikus (cLN, sLN) kristályokon végeztem, amelyek különböző Mg-adalékolással rendelkeztek. Mind az ordinárius, mind az extraordinárius polarizációkat figyelembe vettem. A kristályokat 180 GW/cm²-es intenzitással pumpáltam (ami gyakorlatias intenzitási szintnek tekinthető), hogy elsődlegesen különböző polarizációkkal mérjek abszorpciós együtthatókat, ahelyett, hogy kizárólag a különböző intenzitási szintekben lévő együtthatók változására összpontosítanék. Az eredmények azt mutatják, hogy a fő többszörös abszorpció ezen a pumpálási hullámhosszon nem tisztán négyfotonos természetű. Mindazonáltal effektív négyfotonos abszorpciós értékeket határoztam meg illesztések révén, amelyek felhasználhatók nemlineáris optikai alkalmazások tervezésére a mérések során használt intenzitásoknál [S1].

- IV. Megmutattam, hogy az effektív négyfotonos abszorpciós (4PA) együtthatóknak minimuma van azon Mg-adalékolásoknál (sLN: 0,67% Mg és cLN: 6,0% Mg), amelyeknél a legkisebb a fotorefrakció. Az

ordinárius polarizációnál mért Z-scan görbék lényegesen nagyobb abszorpciót mutattak, mint az extraordinárius polarizáción mért görbék, azonban a magnézium adalékolástól való függés sokkal erősebb volt, mint 800 nm-nél. A 4PA 1030 nm-en nagyobb nemlineáris abszorpciót mutatott, mint a 3PA 800 nm-en ugyanazon intenzitási szinten. Ez az eredmény azt jelzi, hogy a másodharmonikus és a hibahelyekhez kapcsolódó polaronok közötti kölcsönhatásoknak szerepe van ezekben a folyamatokban [S1, S2].

- V. Összehasonlítottam a két kristályt hasonló körülmények között. Meglepő módon a háromfotonos abszorpció (3PA) együttthatók nagyobbak voltak LT esetében, mint LN esetében, annak ellenére, hogy LT nagyobb tiltott sáv szélességgel rendelkezik, mint LN. Ez arra utal, hogy LT nem jobb LN-hoz képest nemlineáris optikai alkalmazásokat tekintve, ha 800 nm-es pumpáló impulzusokat használnak. Ez összhangban van azzal a megfigyeléssel, miszerint a többfotonos (külső) fotoemisszió esetén a kibocsátás jelentősen megnő, amikor a gerjesztési fotonenergia a többfotonos fotoemisszió két különböző rendjének határán van [S1, S2].

Publikációs Lista

A disszertációhoz köthető publikációk

[S1] **I. Benabdelghani**, G.Tóth, G. Krizsán, G. Bazsó, Z. Szaller, N. Mbithi, P. Rácz, P. Dombi, G. Polónyi, and János Hebling, "Three-photon and four-photon absorption in lithium niobate measured by the Z-scan technique", *Optics Express*. 32(5), 7030-7043 (2024).

[S2] **I. Benabdelghani**, G. Bazsó, G.Tóth, P. Rácz, P. Dombi, János Hebling, and G. Polónyi, "Three-photon absorption in lithium tantalate measured by the Z-scan technique", *Optical Materials*. Submitted, (2024).

Előadások

[E1] **I. Benabdelghani**, V. Gupta, A. Sharma, A. Gupta, G. Á. Polónyi, J. Hebling, J. A. Fülöp, "Terahertz pump transmission measurements in lithium niobate", 10th Jubilee Interdisciplinary Doctoral Conference, 347 297 (2021).

[E2] **I. Benabdelghani**, G. Krizsán, L. Nasi, N. M. Mbithi, J. A. Fülöp, "Measurements of four-photon absorption in lithium niobate", 1st International Conference on Sustainable Energy and Advanced Materials, (2021).

[E3] **I. Benabdelghani**, L. Nasi, G. Tóth, L. Pálfalvi, J. Hebling, G. Krizsán, "Measurement of Four Photon Absorption Coefficient in Lithium Niobate by Z-scan Technique", 9th International Conference on Applications of Femtosecond Lasers in Materials Science, (2022).

[E4] **I. Benabdelghani**, G.Tóth, G. Krizsán, N. Mbithi, G. Bazsó, P. Rácz, P. Dombi, J. Hebling, G. Polónyi, "Three-photon and Four-photon Absorption in Lithium Niobate and

Lithium Tantalate by Z-scan Technique", Lasers and Electro-Optics Europe & European Quantum Electronics Conference (CLEO/Europe-EQEC), (2023).

[E5] G. Polónyi, G. Tóth, N. Mbithi, Z. Tibai, **I. Benabdelghani**, L. Nasi, G. Krizsán, G. Illés, J. Hebling, "Investigation of Terahertz Pulse Generation in Semiconductors Pumped at Long Infrared Wavelengths", Lasers and Electro-Optics Europe & European Quantum Electronics Conference (CLEO/Europe-EQEC), (2023).

Egyéb publikációk

[S3] N. M. Mbithi, G. Tóth, Z. Tibai, **I. Benabdelghani**, L. Nasi, G. Krizsán, J. Hebling, and G. Polonyi, "Investigation of terahertz pulse generation in semiconductors pumped at long infrared wavelengths," J. Opt. Soc. Am. B, 39(10), 2684-2691 (2022).

Irodalomjegyzék

1. M. Nagai, M. Jewariya, Y. Ichikawa, H. Ohtake, T. Sugiura, Y. Uehara, and K. Tanaka, “Broadband and high power terahertz pulse generation beyond excitation bandwidth limitation via $\chi(2)$ cascaded processes in LiNbO₃,” *Opt. Express*. **17**(14), 11543–11549 (2009).
2. B. Zhang, Z. Ma, J.-L. Ma, X.-J. Wu, C. Ouyang, D. Kong, T. Hong, X. Wang, P. Yang, L. Chen, Y. Li, J. Zhang, “1.4 mJ high energy terahertz radiation from lithium niobates,” *Las. & Phot. Rev.* **15**(3), 1–11 (2021).
3. L. Carletti, C. McDonnell, U. A. Leon, D. Rocco, M. Finazzi, A. Toma, T. Ellenbogen, G. D. Valle, M. Celebrano, and C. D. Angelis, “Nonlinear THz Generation through Optical Rectification Enhanced by Phonon–Polaritons in Lithium Niobate Thin Films,” *ACS Photonics*. **10**(9), 3419–3425 (2023).
4. S. Carbajo, J. Schulte, X. Wu, K. Ravi, D. N. Schimpf, and F. X. Kärtner, “Efficient narrowband terahertz generation in cryogenically cooled periodically poled lithium niobate,” *Opt. Lett.* **40**(24), 5762–5765 (2015).
5. F. Ahr, S. W. Jolly, N. H. Matlis, S. Carbajo, T. Kroh, K. Ravi, D. N. Schimpf, J. Schulte, H. Ishizuki, T. Taira, A. R. Maier, and F. X. Kärtner, “Narrowband terahertz generation with chirped-and-delayed laser pulses in periodically poled lithium niobate,” *Opt. Lett.* **42**(11), 2118–2121 (2017).
6. F. Lemery, T. Vinatier, F. Mayet, R. Assmann, E. Baynard, J. Demailly, U. Dorda, B. Lucas, A.-K. Pandey, M. Pittmann, “Highly scalable multicycle terahertz production with a homemade periodically poled macrocrystal,” *Commun. Phys.* **3**(1), 150 (2020).
7. Y.-S. Lee, T. Meade, V. Perlin, H. Winful, T. B. Norris, and A. Galvanauskas, “Generation of narrow-band terahertz radiation via optical rectification of femtosecond

- pulses in periodically poled lithium niobate,” *Appl. Phys. Lett* **76**(18), 2505–2507 (2000).
8. J. Hebling, G. Almási, I. Z. Kozma, and J. Kuhl, “Velocity matching by pulse front tilting for large area THz-pulse generation,” *Opt. Express*. **10**(21), 1161–1166 (2002).
 9. E. W. Van Stryland, M. Sheik-Bahae, A. A. Said, D. J. Hagan, and M. J. Soileau, “Characterization of nonlinear optical materials,” *Proc. SPIE*. **2114**, 444–468 (1994).
 10. V. Nathan, A. H. Guenther, and S. S. Mitra, “Review of multiphoton absorption in crystalline solids,” *JOSA B*. **2**(2), 294–316 (1985).
 11. T. Kawamori, P. G. Schunemann, V. Gruzdev, and K. L. Vodopyanov, “High-order ($N = 4 - 6$) multiphoton absorption and mid-infrared Kerr nonlinearity in GaP, ZnSe, GaSe, and ZGP crystals,” *APL Photon* **7**(8), 086101 (2022).
 12. A. R. Zanatta, “The optical bandgap of lithium niobate (LiNbO₃) and its dependence with temperature,” *Results. Phys.* **39**, 105736 (2022).
 13. K. Lengyel, Á Péter, L. Kovács, G. Corradi, L. Pálfalvi, J. Hebling, M. Unferdorben, G. Dravec, I. Hajdara, Z. Szaller, and K. Polgár, “Growth, defect structure, and THz application of stoichiometric lithium niobate,” *Appl. Phys. Rev.* **2**(4), 040601 (2015).
 14. F. Bach, M. Mero, M.-H. Chou, and V. Petrov, “Laser induced damage studies of LiNbO₃ using 1030-nm, ultrashort pulses at 10-1000 kHz,” *Opt. Mater. Express*. **7**(1), 240–252 (2017).
 15. L. Brehmer, Y. Kaminorz, R. Dietel, G. Grasnick and G. Herkner, “Frontiers in Biosensorics I: Fundamental Aspects,” ed F. W. Scheller, F. Schubert and J. Fedrowitz (Basel: Birkhäuser Verlag) 155–166 (1997).
 16. S. Kase, K. Ohi, “Optical absorption and interband Faraday rotation in LiTaO₃ and LiNbO₃,” *Ferroelectrics*. **8**(1), 419–420 (1974).

17. A. Buzády, M. Unferdorben, G. Tóth, J. Hebling, I. Hajdara, L. Kovács, L. Pálfalvi, “Refractive Index and Absorption Coefficient of Undoped and Mg-Doped Lithium Tantalate in the Terahertz Range,” *J. Infrared Millim. Terahertz Waves*. **38**, 963–971 (2017).
18. M. Sheik-Bahae, A. A. Said, T. Wei, D. J. Hagan, and E. W. Van Stryland, “Sensitive measurement of optical nonlinearities using a single beam,” *IEEE J. Quantum Electron*. **26**(4), 760–769 (1990).
19. O. Beyer, D. Maxein, K. Buse, B. Sturman, H. T. Hsieh, and D. Psaltis, “Femtosecond time-resolved absorption processes in lithium niobate crystals,” *Optics Lett*. **30**(11), 1366–1368 (2005).
20. D. Guichaoua, I. Syvorotka, I. Solskii, N. Syvorotka, K. Waszkowska, A. Andrushchak, B. Sahraoui, “Specific complex-oxide crystals with strong nonlinear absorption and nonlinear refraction as promising optical materials,” *Opt. Materials*. **121**, 111493 (2021).
21. I. S. Steinberg, A. V. Kirpichnikov, and V. V. Atuchin, “Two-photon absorption in undoped LiTaO₃ crystals,” *Opt. Mater*. **78**, 253–258 (2018).
22. I.S. Steinberg, V.V. Atuchin, “Two-photon holographic recording in LiTaO₃:Fe crystals with high-intensity nanosecond pulses at 532 nm,” *Materials. Chem. Phys*. **253**(23), 122956 (2020).
23. H. P. Li, J. K. Liao, X. G. Tang, W. Ji, “Three-photon absorption in MgO-doped LiNbO₃ crystal,” in *CLEO/QELS 2008 JWA35* (2008).
24. H. Badorreck, S. Nolte, F. Freytag, P. Bäune, V. Dieckmann, and M. Imlau, “Scanning nonlinear absorption in lithium niobate over the time regime of small polaron formation,” *Opt. Materials Express*. **5**(12) 2729–2741 (2015).
25. M. C. Hoffmann, K.-L. Yeh, J. Hebling, and K. A. Nelson, “Efficient terahertz generation by optical

- rectification at 1035 nm,” *Opt. Express.* **15**(18), 11706–11713 (2007).
26. M. V. Tsarev, D. Ehberger, and P. Baum, “High-average-power, intense THz pulses from a LiNbO₃ slab with silicon output coupler,” *Appl. Phys. B.* **122**(2), 30 (2016).